

## TENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
 US Department of Commerce  
 United States Patent and Trademark  
 Office, PCT  
 2011 South Clark Place Room  
 CP2/5C24  
 Arlington, VA 22202  
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
 in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 07 May 2001 (07.05.01)	
International application No. PCT/EP00/07026	Applicant's or agent's file reference 0050/050554
International filing date (day/month/year) 21 July 2000 (21.07.00)	Priority date (day/month/year) 06 August 1999 (06.08.99)
Applicant PÜTTER, Hermann et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
08 January 2001 (08.01.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was  
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer  Claudio Borton
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/07026

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
IPC 7 C25B3/02 C07C43/315 C07C47/277

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C25B C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 460 451 A (BASF) 11 December 1991 (1991-12-11) cited in the application claims; examples ---	1
A	T. SHONO: "Electro-organic chemistry. Part 93. Electro-organic transformation of aldehydes and ketones to alpha-hydroxylated acetals using mediators and some synthetic uses of the products" JOURNAL OF THE CHEMICAL SOCIETY, PERKIN TRANSACTIONS 1, 1986, pages 73-77, XP002138877 LETCHEWORTH GB the whole document -----	1

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

**\* Special categories of cited documents:**

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 December 2000

Date of mailing of the international search report

02/01/2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Wright, M



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/07026

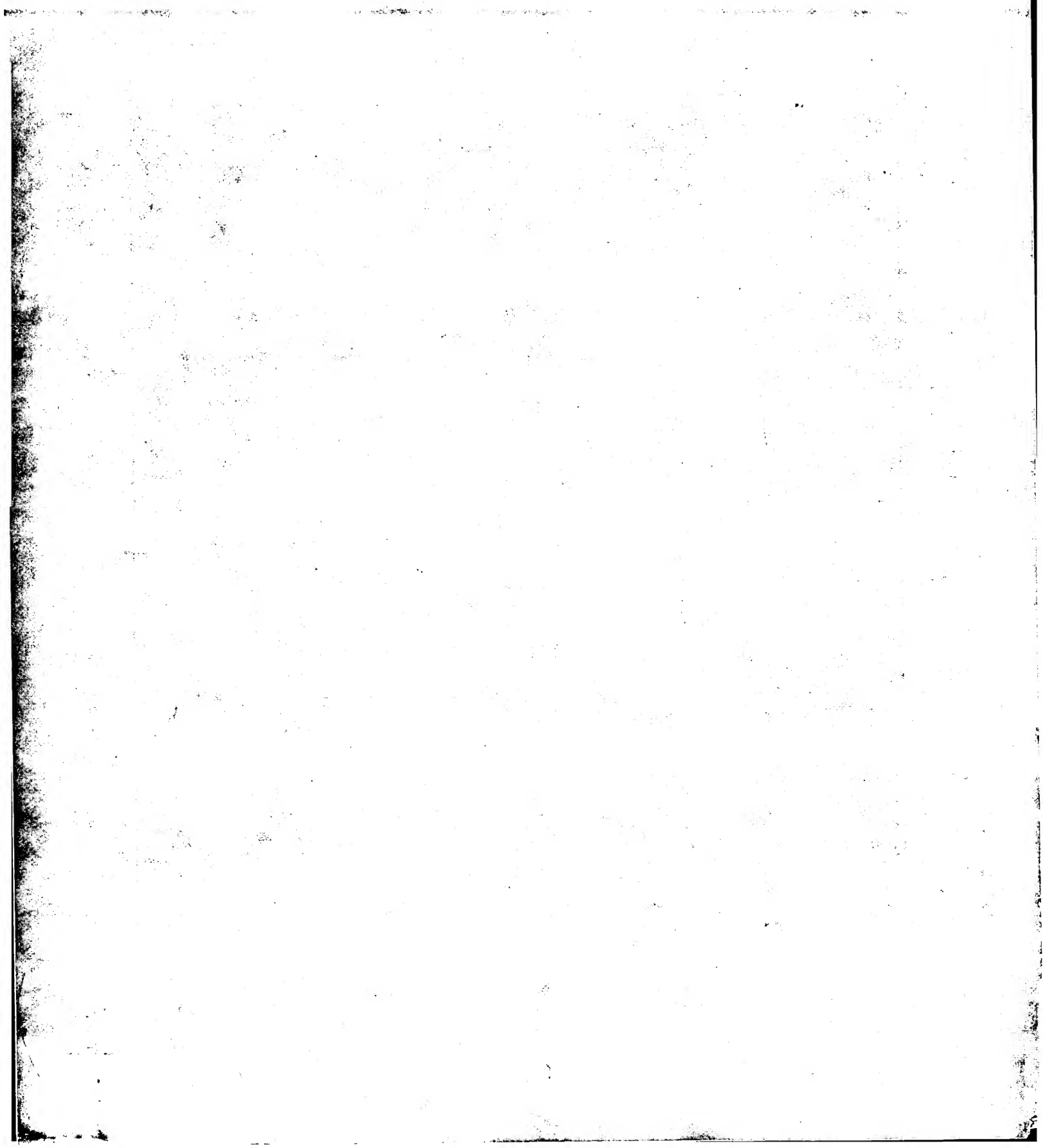
Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 460451 A	11-12-1991	DE 4017575 A	05-12-1991
		DE 4017576 A	05-12-1991
		DE 59105416 D	14-06-1995
		US 5266171 A	30-11-1993



2  
1  
4

117.

118.



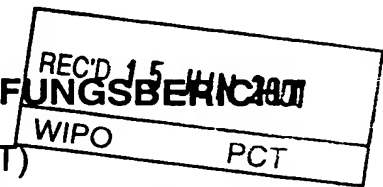
10/038.173 T. 5

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0050/050554	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/07026	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 21/07/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 06/08/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C25B3/02		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.  
☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).  
Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.



RECEIVED

MAY 01 2002

TC 1700

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  08/01/2001	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  13.06.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Hahn, H  Tel. Nr. +49 89 2399 8450 

RECEIVED

MAY 11 1961

NO 1100



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/07026

## I. Grundlag des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):  
**Beschreibung, Seiten:**

1-12                      ursprüngliche Fassung

### **Patentansprüche, Nr.:**

1-14                      ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,              Seiten:
- ☐ Ansprüche,                Nr.:
- ☐ Zeichnungen,            Blatt:



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/07026

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-14
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-14
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-14
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen  
siehe Beiblatt

## VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:  
siehe Beiblatt

## VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:  
siehe Beiblatt



**1. Sektion V:**

Die Dokumente des Internationalen Recherchenberichtes werden wie folgt als relevant betrachtet:

D1 = EP 0 460 451 A (BASF) 11. Dezember 1991 (1991-12-11)

D2 = T. SHONO: "Electro-organic chemistry. Part 93. Electro-organic transformation of aldehydes and ketones to  $\alpha$ -hydroxylated acetals using mediators and some synthetic uses of the products" JOURNAL OF THE CHEMICAL SOCIETY, PERKIN TRANSACTIONS 1, 1986, Seiten 73-77, XP002138877 LETCHWORTH GB

1.1 Dokument D1, das in der Anmeldung korrekt erwähnt ist, beschreibt ein Verfahren zu Herstellung von  $\alpha$ -Hydroxymethylacetalen und  $\alpha$ -Hydroxymethylketalen (Formeln I bzw. I') ausgehend von den entsprechenden Carbonylverbindungen (II bzw. II') durch elektrochemische Umsetzung mit einem Alkohol der allgemeinen Formel III bzw. III' in Gegenwart eines Hilfselektrolyten und 0.1 bis 5 Gew.% Wasser (vgl. Ansprüche 1-4). Der Hilfselektrolyt kann Jodide oder Bromide der Alkalimetalle enthalten bzw. es können Graphitelektroden eingesetzt werden (vgl. Ansprüche 5-7; Seite 8, Zeilen 31-43; Beispiele). Andere Elektrodenmaterialien, wie z.B. Platin oder Ruthenium- und Chromoxid, sowie Eisen, Stahl, Nickel und Platin sind ebenfalls offenbart (vgl. Seite 8, Zeilen 49-52).

1.1.1 Der Zusatz von katalytischen Metallsalzen von Metallen der 1., 2., 6. oder 8. Nebengruppe oder von Blei, Zinn oder Rhenium ist in D1 nirgends erwähnt oder nahegelegt. Dokument D1 wird daher als nicht relevant erachtet.

1.2 Dokument D2 beschreibt ebenfalls die elektrochemische Darstellung von  $\alpha$ -Hydroxyacetalen mittels Graphitkathode und Pt-Anode mit einer Lösung enthaltend Kaliumjodid und Kaliumhydroxid (vgl. Seite 75, linke Spalte, zweiter Absatz; Zusammenfassung).

1.2.1 Auch für Dokument gilt die Aussage des oberen Paragraphen 1.1.1 vollinhaltlich. D2 ist daher nicht relevant.

1.3 Aus dem Vorstehenden ergibt sich, daß das beanspruchte Verfahren gemäß



Anspruch 1 vom vorliegenden St.d.T. weder bekannt noch herleitbar ist. Die Ansprüche 1-14 erfüllen daher die Erfordernisse von Artikel 33(2) und (3) PCT. Die gewerbliche Anwendbarkeit im Bereich der organischen Synthese ist offensichtlich.

## **2. Sektion VIII:**

Die Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse von Artikel 6 PCT:

2.1 Anspruch 1 ist durch die Definition auf Seite 14, Zeilen 14-15 "in der R<sup>4</sup> die gleiche Bedeutung wie in Formel II hat, **V und W die gleiche Bedeutung wie in Formel II haben**" unklar, da die Formel II keinerlei V oder W aufweist.

Offensichtlich sollte tatsächlich die Formel III gemeint sein.

2.2 **Anspruch 1 ist des weiteren durch die Formulierung auf Seite 15, Zeile 8 "in katalytischen Mengen"** unklar, da dieser Begriff keine präzise Definition der zugesetzten Menge des Metallsalzes erlaubt bzw. nicht definiert, was katalysiert werden soll.

2.3 Anspruch 11 ist durch die Formulierungen "im wesentlichen bestehend aus ... **gegebenenfalls sonstigen üblichen Cosolventien**" sowie "katalytischen Mengen", die keine präzise Definition erlauben, unklar.

Es ist unklar, was unter den "sonstigen üblichen" Cosolventien verstanden werden soll. Wo liegen außerdem die Untergrenze bzw. die Obergrenze für die "katalytischen Mengen" des Metallsalzes, wobei im übrigen undefiniert ist, welche Reaktion überhaupt katalysiert werden soll.

## **3. Sektion VII:**

Auf Seite 6 der Beschreibung sollte ein Tippfehler in Zeile 45 korrigiert lauten "der einzelnen Produkte".





VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>0050/050554</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 00/07026</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>21/07/2000</b>	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>06/08/1999</b>
Anmelder <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT</b>		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☐ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☒ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. —

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ keine der Abb.

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.



Feld III

WORTLAUT DER ZUSAMMENFASSUNG (Fortsetzung von Punkt 5 auf Blatt 1)

Verfahren zur Herstellung von in alpha-Stellung oxidierten Carbonylverbindungen durch elektrochemische Umsetzung mit einem Alkohol in Gegenwart eines Hilfselektrolyten und katalytischen Mengen eines Metallsalzes.



# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/07026

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C25B3/02 C07C43/315 C07C47/277

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C25B C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 460 451 A (BASF) 11. Dezember 1991 (1991-12-11) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Beispiele ---	1
A	T. SHONO: "Electro-organic chemistry. Part 93. Electro-organic transformation of aldehydes and ketones to alpha-hydroxylated acetals using mediators and some synthetic uses of the products" JOURNAL OF THE CHEMICAL SOCIETY, PERKIN TRANSACTIONS 1, 1986, Seiten 73-77, XP002138877 LETCWORTH GB das ganze Dokument -----	1

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*&\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

21. Dezember 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

02/01/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Wright, M



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/07026

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
-------------------------------------------	---------------------	----------------------------	---------------------

EP 460451	A	11-12-1991	DE 4017575 A	05-12-1991
			DE 4017576 A	05-12-1991
			DE 59105416 D	14-06-1995
			US 5266171 A	30-11-1993

---





## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

BASF AKTIENGESELLSCHAFT

D-67056 Ludwigshafen, Marken u. Lizenzen.  
ALLEMAGNE

27. OKT. 2000

Date of mailing (day/month/year) 18 October 2000 (18.10.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 0050/050554	
International application No. PCT/EP00/07026	International filing date (day/month/year) 21 July 2000 (21.07.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 06 August 1999 (06.08.99)
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
06 Augu 1999 (06.08.99)	199 37 108.3	DE	21 Sept 2000 (21.09.00)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

David Lopez-Ramirez

Telephone No. (41-22) 338.83.38



Translation  
75/030173

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 0050/050554	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/07026	International filing date (day/month/year) 21 July 2000 (21.07.00)	Priority date (day/month/year) 06 August 1999 (06.08.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C25B 3/02		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.

☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of \_\_\_\_\_ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☒ Certain defects in the international application
- VIII ☒ Certain observations on the international application

RECEIVED  
APR 26 2002  
TC 1/00

Date of submission of the demand 08 January 2001 (08.01.01)	Date of completion of this report 13 June 2001 (13.06.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

RECEIVED

APR 28 1964

TO

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/07026

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
 pages \_\_\_\_\_ 1-12 \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
 pages \_\_\_\_\_ 1-14 \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item. These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/07026

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

The following documents of the international search report are considered relevant:

D1: EP 0 460 451 A (BASF) December 11, 1991

D2: T.SHONO: "Electro-organic chemistry. Part 93.  
Electro-organic transformation of aldehydes and ketones to alpha-hydroxylated acetals using mediators and some synthetic uses of the products"  
JOURNAL OF THE CHEMICAL SOCIETY, PERKIN TRANSACTIONS  
1, 1986, pages 73-77, XP002138877 LETCHWORTH, GB.

1.1 Document D1, which is correctly identified in the application, describes a process for the preparation of alpha-hydroxymethyl acetals and alpha-hydroxymethyl-ketone acetals (Formula I or I') based on the corresponding carbonyl compounds (II or II') by means of electrochemical reaction using an alkanol of the general Formula III or III' in the presence of an auxiliary electrolyte containing 0.1 to 5% by weight of water (see Claims 1-4). The auxiliary electrolyte can contain the alkali metals iodide or bromide or graphite electrodes can be used (see Claims 5-7, page 8, lines 31-43, examples).





Other electrode materials such as platinum or ruthenium- and chromium oxide as well as iron, steel, nickel and platinum are also disclosed (see page 8, lines 49-52).

1.1.1 The addition of catalytic metal salts from metals of the 1<sup>st</sup>, 2<sup>nd</sup>, 6<sup>th</sup> or 8<sup>th</sup> subgroup or from lead, tin or rhenium is not mentioned or suggested anywhere in D1. Document D1 is therefore not considered relevant.

1.2 Document D2 also describes the electrochemical production of alpha-hydroxylated acetals using a graphite cathode and platinum anode with a solution containing potassium iodide and potassium hydroxide (see page 75, left hand column, second paragraph; abstract).

1.2.1 The contents of the above paragraph 1.1.1 also apply in full to document D2. D2 is therefore not relevant.

1.3 From the above it appears that the method claimed in to Claim 1 is neither known nor can be derived from the current prior art. Claims 1-14 therefore fulfil the requirements of PCT Article 33(2) and (3). The industrial applicability in the area of organic synthesis is obvious.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/07026

**VII. Certain defects in the international application**

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

On page 6 of the description a typing error should be corrected in line 45 to "der einzelnen Produkte".



## VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

The application does not meet the requirements of PCT Article 6:

- 2.1 The definition on page 14, lines 14-15 of Claim 1 "in which R<sup>4</sup> has the same meaning as in Formula II, **V and W have the same meaning as in Formula II**" is unclear because Formula II does not contain either V or W.

In fact this is obviously a reference to Formula III.

- 2.2. The expression on page 15, line 8 of Claim 1 "in **catalytic quantities**" is also unclear as this concept neither gives any precise definition of the quantity of the metal salt introduced or defines what is to be catalysed.

- 2.3 Claim 11 is unclear in the expressions "essentially consisting of... optionally **other customary cosolvents**" and "catalytic quantities", which do not allow for a precise definition.

It is unclear what is to be understood by "other customary" cosolvents. In addition, what is the lower limit or upper limit for the "catalytic quantities" of the metal salt, since there is no definition at all of what reaction is to be catalysed.



(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
15. Februar 2001 (15.02.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 01/11111 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: C25B 3/02,  
C07C 43/315, 47/277

(21) Internationales Aktenzeichen: ✓ PCT/EP00/07026

(22) Internationales Anmeldedatum:  
✓ 21. Juli 2000 (21.07.2000)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

✓ (30) Angaben zur Priorität:  
199 37 108.3 6. August 1999 (06.08.1999) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme  
von US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];  
D-67056 Ludwigshafen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): PÜTTER, Hermann  
[DE/DE]; Haardter Strasse 1a, D-67433 Neustadt (DE).

SCHIERLE-ARNDT, Kerstin [DE/DE]; Strahlen-  
burgstrasse 27, D-68219 Mannheim (DE). BOTZEM,  
Jörg [DE/DE]; Albert-Einstein-Allee 8c, D-67117 Lim-  
burgerhof (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: BASF AKTIENGE-  
SELLSCHAFT; D-67056 Ludwigshafen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): CA, JP, US.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT,  
BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,  
NL, PT, SE).

**Veröffentlicht:**

- Mit internationalem Recherchenbericht.
- Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden  
Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen  
eintreffen.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen  
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on  
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe  
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING CARBONYL COMPOUNDS WHICH ARE OXIDIZED IN POSITION  $\alpha$

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON IN  $\alpha$ -STELLUNG OXIDIERTEN CARBONYLVERBINDUN-  
GEN

(57) Abstract: A method for producing compounds which are oxidized in an alpha position by electrochemical reaction with alcohol  
in the presence of an auxiliary electrolyte and catalytic amounts of a metal salt.

(57) Zusammenfassung: Verfahren zur Herstellung von in  $\alpha$ -Stellung oxidierten Carbonylverbindungen durch elektrochemi-  
sche Umsetzung mit einem Alkohol in Gegenwart eines Hilfselektrolyten und katalytischen Mengen eines Metallsalzes.

WO 01/11111 A1

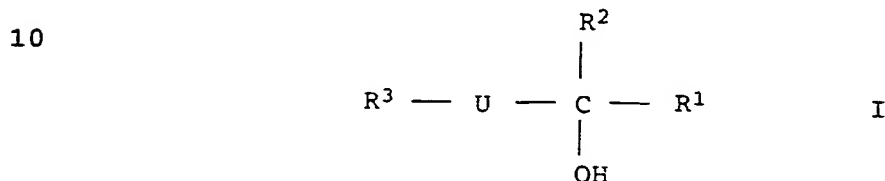




Verfahren zur Herstellung von in  $\alpha$ -Stellung oxidierten Carbonylverbindungen

## 5 Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von einer Verbindung der allgemeinen Formel I



15

in der  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  Wasserstoff,  $C_1$ - bis  $C_{20}$ -Alkyl,  $C_2$ - bis  $C_{20}$ -Alkenyl,  $C_2$ - bis  $C_{20}$ -Alkynyl,  $C_3$ - bis  $C_{12}$ -Cycloalkyl,  $C_4$ - bis  $C_{20}$ -Cycloalkyl-alkyl,  $C_1$ - bis  $C_{20}$ -Hydroxyalkyl, gegebenenfalls durch  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis

20  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  $C_8$ -Alkoxycarbonyl oder Cyano substituiertes Aryl oder  $C_7$ - bis  $C_{20}$ -Arylalkyl, oder  $R^1$  und  $R^2$  oder  $R^3$  gemeinsam eine gegebenenfalls durch  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy und/oder Halogen ein- bis zweifach  
 25 substituierte  $C_2$ - bis  $C_9$ -Alkandiyleinheit, in der 1 oder 2 Methylgruppen auch durch eine Einheit (CH=CH) ersetzt sein können, bedeutet und  $R^3$  zusätzlich eine acetalisierte Carbonylgruppe, in der sich die Alkoxygruppen von einem Alkohol der allgemeinen Formel II

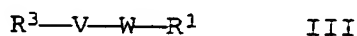
30



II

ableiten, in der  $R^4$  für  $C_1$ - bis  $C_6$ -Alkyl steht, bedeutet und

35 U eine acetalisierte Carbonylgruppe, in der sich die Alkoxygruppen von einem Alkohol der allgemeinen Formel II ableiten oder einer Verbindung der allgemeinen Formel III



40

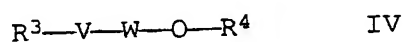
in der  $R^1$  die gleiche Bedeutung wie in Formel I hat und  $R^3$  ausschließlich gegebenenfalls  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  
 45  $C_8$ -Alkoxycarbonyl oder Cyano substituiertes Aryl ist

V eine Carbonylgruppe bedeutet oder die gleiche Bedeutung wie U in Formel I hat und

W die gleiche Bedeutung wie V hat, mit der Maßgabe, daß eine  
5 der Gruppen V oder W eine Carbonylgruppe und die andere Gruppe eine acetalisierte Carbonylgruppe bedeutet

oder

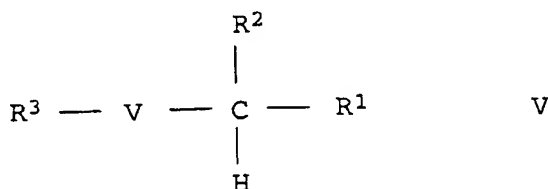
10 einer Verbindung der allgemeinen Formel IV



in der  $R^4$  die gleiche Bedeutung wie in Formel II hat, V und W die  
15 gleiche Bedeutung wie in Formel II haben und  $R^3$  die gleiche Bedeutung wie in Formel III hat,

indem man eine Verbindung der allgemeinen Formel V

20



25

in der V,  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  die gleiche Bedeutung wie in Formel I bzw. III haben, mit der Maßgabe, daß

30 - für den Fall, daß eine Verbindung der Formel III gewünscht wird, nur eine solche Verbindung Va eingesetzt wird, in der

$R^1$  ausschließlich Wasserstoff bedeutet und

35  $R^3$  ausschließlich gegebenenfalls durch  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  $C_8$ -Alkoxycarbonyl oder Cyano substituiertes Aryl und

40

- für den Fall, daß Verbindungen der Formel IV gewünscht werden, nur eine solche Verbindung Vb eingesetzt wird, in der

$R^1$  und  $R^2$  ausschließlich Wasserstoff bedeuten,

45

- $R^3$  ausschließlich gegebenenfalls durch  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  $C_8$ -Alkoxycarbonyl oder Cyano substituiertes Aryl

mit einem Alkohol der allgemeinen Formel II in Gegenwart eines Hilfselektrolyten und katalytischen Mengen eines Metallsalzes  
10 (S), abgeleitet von einem Metall der 1., 2., 6. oder 8. Nebengruppe oder von Blei, Zinn oder Rhenium, elektrochemisch umgesetzt.

Aus der EP-A-460 451 ist ein Verfahren zur Herstellung von  $\alpha$ -Hydroxymethylketalen durch elektrochemische Oxidation von  
15 Aldehyden bzw. Ketonen in Gegenwart von Alkoholen und Halogenverbindungen als Hilfselektrolyten bekannt. Die Nacharbeitung der Beispiele zeigt, daß unter den beschriebenen Verfahrensbedingungen auch höher oxydierte Carbonylverbindungen gebildet werden, wenn die Carbonylgruppe in  $\alpha$ -Stellung zu einem aromatischen  
20 Rest steht. So kann zum Beispiel eine Methylengruppe in  $\alpha$ -Position zur Carbonylgruppe bis zur Carbonylfunktion oxydiert werden und zusätzlich kann die ursprünglich vorhandene Carbonylbindung in Aldehyd oder Ketofunktion bis zur Carboxylgruppe oxydiert werden. Es entstehen also nicht nur  $\alpha$ -Hydroxyketale sondern auch  
25  $\alpha$ -Ketaldehyde,  $\alpha$ -Ketoacetale,  $\alpha$ -Ketalcarbonsäureester und  $\alpha$ -Ketoorthoester. Dieses Verfahren vermag jedoch noch nicht vollständig zu befriedigen, da die Gesamtausbeute der genannten Wertprodukte relativ gering ist und zusätzlich große Mengen an sonstigen weitgehend unbrauchbaren Produkten gebildet werden.

30 Die nicht vorveröffentlichte Deutsche Patentanmeldung 19904929 betrifft ein Verfahren zur Herstellung von 2,2,3,3-Tetramethoxypropanol durch elektrochemische Oxydation von Methylglyoxaldimethylacetal unter Verwendung einer Mischung enthaltend Methanol,  
35 Wasser und einen Hilfselektrolyten als Elektrolysemedium und einer Kathode aus Eisen, Stahl, Platin oder Zink.

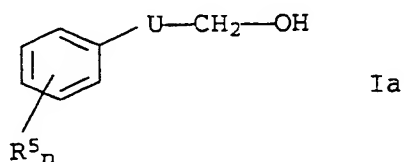
Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung bestand also darin, ein elektrochemisches Verfahren bereitzustellen, mit dem man aus  
40 Carbonylverbindungen in Keto- oder Aldehydfunktion in hohen Ausbeuten  $\alpha$ -Hydroxyketale,  $\alpha$ -Ketalaldehyde,  $\alpha$ -Ketoacetale,  $\alpha$ -Ketalcarbonsäureester und  $\alpha$ -Ketoorthoester herstellen kann. Demgemäß wurde das vorstehend definierte Verfahren erfunden.

Das erfindungsgemäße Verfahren eignet sich besonders zur Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel I III oder IV, in der sich der Rest  $R^4$  in der acetalysierten Carbonylgruppe von Methanol oder Ethanol ableitet.

5

Unter den Verbindungen der Formel I sind solche der Formel Ia

10



in der U die gleiche Bedeutung wie in Formel I hat,

15

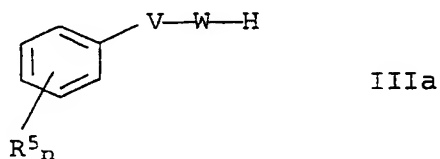
n 0, 1, 2 oder 3 bedeutet und

$R^5$   $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  $C_8$ -Alkoxy-carbonyl oder Cyano bedeutet, bevorzugt.

20

Gleichfalls bevorzugt sind Verbindungen der allgemeinen Formel IIIa

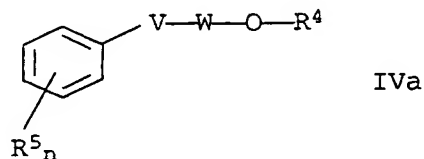
25



30

in der n, V, W und  $R^5$  die gleiche Bedeutung wie in Formel Ia bzw. III haben

35



40

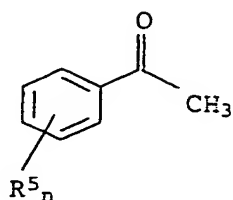
oder der allgemeinen Formel IVa

in der n, V, W,  $R^4$  und  $R^5$  die gleiche Bedeutung wie in Formel Ia bzw. IIIa haben.

45

Diese Verbindungen werden hergestellt, indem man als Ausgangs-  
verbindung der allgemeinen Formel V eine solche der allgemeinen  
Formel Va

5

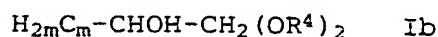


Va

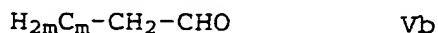
10

einsetzt, in der n und  $R^5$  die gleiche Bedeutung wie in Formel Ia  
haben.

- 15 Weiterhin eignet sich das Verfahren besonders zur Herstellung von  
Verbindungen der allgemeinen Formel Ib



- 20 in der m eine Zahl von 1 bis 10 bedeutet und  $R^4$  die gleiche Bedeu-  
tung wie bei Formel II hat und zu deren Herstellung man eine Ver-  
bindung der allgemeinen Formel Vb



25

einsetzt.

Ganz besonders eignet sich das Verfahren zur Herstellung von

- 30 - 2-Phenyl-2,2-dimethoxyethanol, 2-Phenyl-2,2-dimethoxyacetal-  
dehyd und 2-Phenyl-glyoxalldimethylacetal aus Methanol und  
Acetophenon
- $\alpha$ -Hydroxyocatanalldimethylacetal aus Octanal und
- 35 - 2,2,3,3-Tetramethoxypropanol aus Methylglyoxalldimethylacetal.

Als Hilfselektrolyt, der in der Elektrolyselösung enthalten ist,  
handelt es sich im Allgemeinen um einen halogenhaltigen Hilfs-  
40 elektrolyten wie elementares Halogen, Alkylhalogenide oder Halo-  
genwasserstoffe. Bevorzugt können auch halogenhaltige Salze ins-  
besondere Jodide oder Bromide eingesetzt werden. Beispiele sind  
Ammoniumhalogenide wie Ammoniumbromid, Ammoniumjodid oder Tetra-  
butylammoniumjodid. Besonders bevorzugte Metallhalogenide sind  
45 weiterhin Alkalihalogenide wie Natriumbromid, Natriumjodid, Kali-  
umjodid oder Kaliumbromid.

Bei den Metallsalzen (S) handelt es sich bevorzugt um solche, die sich von Mineralsäuren ableiten. Bei den Anionen des Metallsalzes handelt es sich also beispielsweise um Phosphat, Sulfat, Nitrat, Perchlorat oder Halogenid.

5

Bei den Kationen des Metallsalzes (S) handelt es sich bevorzugt um Eisen-, Nickel-, Platin-, Palladium-, Cobalt-, Zink-, Silber- oder Kupferionen. Das Metallsalz (S) wird der Elektrolyselösung im Allgemeinen in solchen Mengen zugesetzt, daß dessen Metall-  
10 ionen darin in Mengen von 1 bis 1000, bevorzugt 5 bis 500, bevorzugt 5 bis 300 Gew.ppm, bezogen auf die Gesamtmenge der Elektrolyseflüssigkeit enthalten sind.

Gegebenenfalls setzt man der Elektrolyseflüssigkeit übliche Co-  
15 solvenzien zu. Dabei handelt es sich um die in der organischen Chemie allgemein üblichen inerten Lösungsmittel mit einem hohen Oxidationspotential. Beispielhaft genannt seien Dimethylcarbonat oder Propylencarbonat. Neben den genannten Cosolvenzien kann der Elektrolyseflüssigkeit auch Wasser zugesetzt werden, wobei der  
20 Wassergehalt allerdings 5 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge der Elektrolyseflüssigkeit, nicht überschreiten sollte.

Im allgemeinen ist die Elektrolyseflüssigkeit wie folgt zusammengesetzt:

25

- einer Ausgangsverbindung der allgemeinen Formel V
- einem Alkohol der allgemeinen Formel II
- 30 - einem halogenhaltigen Hilfselektrolyten
- katalytischen Mengen des Metallsalzes (S)
- gegebenenfalls den gewünschten Produkten der allgemeinen Formeln I, III und IV  
35
- gegebenenfalls sonstigen Nebenprodukten der Elektrolyse die von den Verbindungen der allgemeinen Formeln I, II, III, IV und V abgeleitet sind
- 40 - gegebenenfalls sonstigen üblichen Cosolventien

Das Verhältnis der Produkte der allgemeinen Formeln I und V sowie der sonstigen Nebenprodukte zu den Ausgangsverbindungen in der  
45 Elektrolyseflüssigkeit und das Verhältnis der einzelnen Produkte

mit unterschiedlichem Oxidationsgrad zueinander ist naturgemäß abhängig vom Reaktionsfortschritt.

Das Verhältnis der Produkte der allgemeinen Formeln I, III, IV 5 und V sowie der sonstigen Nebenprodukte zu den Ausgangsverbindungen in der Elektrolyseflüssigkeit und das Verhältnis der einzelnen Produkte mit unterschiedlichem Oxidationsgrad zueinander ist naturgemäß abhängig vom Reaktionsfortschritt.

- 10 Im allgemeinen beträgt die zur Umsetzung aufgewendete Ladungsmenge 1 bis 7 F pro Mol Ausgangsverbindung der allgemeinen Formel V. Bevorzugt werden 3,5 bis 4 F eingesetzt, wenn Mischungen gewünscht werden, die als Hauptkomponenten Verbindungen der Formel I und III enthalten sollen und 4,5 bis 5,5 F, wenn Mischungen gewünscht werden, die als Hauptkomponenten Verbindungen der Formel 15 I und IV enthalten sollen.

Das erfindungsgemäße Verfahren kann in allen üblichen Elektrolysezellentypen durchgeführt werden. Vorzugsweise arbeitet man mit 20 ungeteilten Durchflussszellen.

Die Stromdichten, bei denen man das Verfahren durchführt, betragen im allgemeinen 0,5 bis 25 A/dm<sup>2</sup>. Die Temperaturen betragen üblicherweise -20 bis 60°C, bevorzugt 0 bis 60°C. Im allgemeinen 25 wird bei Normaldruck gearbeitet. Höhere Drücke werden bevorzugt dann angewandt, wenn bei höheren Temperaturen gearbeitet werden soll, um ein Sieden der Ausgangsverbindungen bzw. Cosolventien zu vermeiden.

30 Als Anodenmaterialien eignen sich beispielsweise Edelmetalle wie Platin oder Metalloxide wie Ruthenium oder Chromoxid oder Mischoxide des Typs RuO<sub>x</sub>TiO<sub>x</sub>. Bevorzugt sind Graphit oder Kohleelektroden.

35 Als Kathodenmaterialien kommen in der Regel Eisen, Stahl, Nickel oder Edelmetalle wie Platin sowie Graphit oder Kohlematerialien in Betracht.

Nach Beendigung der Reaktion wird die Elektrolyseflüssigkeit nach 40 allgemeinen Trennmethoden aufgearbeitet. Hierzu wird die Elektrolyseflüssigkeit im allgemeinen zunächst destilliert und die einzelnen Verbindungen werden in Form von unterschiedlichen Fraktionen getrennt gewonnen. Eine weitere Reinigung kann beispielsweise durch Kristallisation oder chromatographisch erfolgen.

## Experimenteller Teil

Alle Versuche wurden in einer ungeteilten Zelle mit 11 bipolaren Elektroden (10 Spalte, Spaltabstand 1,5 mm) durchgeführt.

5

Stromdichte: 3,4 A/dm<sup>2</sup>

Durchfluß: 400 l/h

## 10 Beispiel 1:

Ansatz:

450 g Acetophenon

30 g Kaliumiodid

2460 g Methanol

Fe(III): 5 ppm

15

Kathode:

Stahl 1.4301

Anode:

Graphit

Dauer:

7,03 h

Temperatur:

36 °C

20 Ladungsmenge:

3,5 F

Stromstärke:

5 A

Umsatz:

&gt;99 %

Ausbeuten der Wertprodukte:

2-Phenyl-2.2-dimethoxy-ethanol:

24 %

25 2-Phenyl-2.2-dimethoxy-acetaldehyd:

42 %

2-Phenylglyoxal dimethylacetal:

0 %

Phenylglyoxylsäuremethylorthoester und 2-Phenyl-2.2-dimethoxy-

essigsäuremethylester:

0 %

Gesamt:

66 %

30

## Beispiel 2:

Ansatz:

450 g Acetophenon

30 g Kaliumiodid

35

2460 g Methanol

Fe(III): 5 ppm

Kathode:

Graphit

Anode:

Graphit

Dauer:

7,03 h

40 Temperatur:

36°C

Ladungsmenge:

3,5 F

Stromstärke:

5 A

Umsatz:

84 %

45 Ausbeuten der Wertprodukte:

2-Phenyl-2.2-dimethoxy-ethanol:

15 %



2-Phenyl-2.2-dimethoxy-acetaldehyd:	24 %
2-Phenylglyoxal dimethylacetal:	8 %
Phenylglyoxylsäuremethylorthoester und 2-Phenyl-2.2-dimethoxy-essigsäuremethylester:	3 %
5 Gesamt:	50 %

## Beispiel 3 (4118/98-176):

10 Ansatz:	450 g Acetophenon
	90 g Kaliumiodid
	2460 g Methanol
	Fe(III): 5 ppm
Kathode:	Stahl 1.4301
Anode:	Graphit
15 Dauer:	7,03 h
Temperatur:	55-58°C
Ladungsmenge:	3,5 F
Stromstärke:	5 A
Umsatz:	88 %
20 Ausbeuten der Wertprodukte:	
2-Phenyl-2.2-dimethoxy-ethanol:	38 %
2-Phenyl-2.2-dimethoxy-acetaldehyd:	19%
2-Phenylglyoxal dimethylacetal:	12%
Phenylglyoxylsäuremethylorthoester und 2-Phenyl-2.2-dimethoxy-	
25 essigsäuremethylester:	1%
Gesamt:	70 %

## Beispiel 4:

30 Ansatz:	450 g Acetophenon
	90 g Kaliumiodid
	2460 g Methanol
	Fe(III): 5 ppm
Kathode:	Stahl 1.4301
35 Anode:	Graphit
Dauer:	10,47 h
Temperatur:	55-58°C
Strommenge:	5,5 F
Stromstärke:	5 A
40 Umsatz:	>99 %
Ausbeuten der Wertprodukte:	
2-Phenyl-2.2-dimethoxy-ethanol:	39 %
2-Phenyl-2.2-dimethoxy-acetaldehyd:	0 %
2-Phenylglyoxal dimethylacetal:	3 %
45 Phenylglyoxylsäuremethylorthoester und 2-Phenyl-2.2-dimethoxy-	
essigsäuremethylester:	39 %

## Beispiel 5:

Ansatz:	450 g Octanal
	90 g Kaliumiodid
5	2460 g Methanol
	Fe (III): 5 ppm
Kathode:	MKUS-F04 (SGL)
Anode:	Graphitfilz RVG 2003, 6 mm (Deutsche Carbon)
10 Dauer:	3,76 h
Temperatur:	55-58°C
Strommenge:	2 F
Stromstärke:	5 A
Umsatz:	>99 %
15 Ausbeute:	37 % $\alpha$ -Hydroxyoctan- alldimethylacetal

## Beispiel 6:

20 Ansatz:	450 g Octanal
	90 g Kaliumiodid
	2460 g Methanol
	Fe (III): 5 ppm
Kathode:	MKUS-F04 (SGL)
25 Anode:	Graphitfilz RVG 2003, 6 mm (Deutsche Carbon)
Dauer:	3,76 h
Temperatur:	26-28°C
Strommenge:	2 F
30 Stromstärke:	5 A
Umsatz:	97 %
Ausbeute:	45 % $\alpha$ -Hydroxyoctan- alldimethylacetal

## 35 Beispiel 7:

Ansatz:	450 g Methylglyoxal- dimethylacetal
	45 g Kaliumiodid
40	2505 g Methanol
	0,11 g NiSO <sub>4</sub>
Kathode:	Graphit
Anode:	Graphit
Dauer:	5 h
45 Temperatur:	30 °C
Stromstärke:	5 A
Umsatz:	52%

Selektivität: 59,4%  
Ausbeute an 2,2,3,3-Tetramethoxypropanol: 31 %

## Vergleichsbeispiel 1:

5

Ansatz: 450 g Acetophenon  
30 g Kaliumiodid  
2460 g Methanol  
Kathode: Stahl 1.4301  
10 Anode: Graphit  
Dauer: 7,03 h  
Temperatur: 36°C  
Ladungsmenge: 3,5 F  
Stromstärke: 5 A  
15 Umsatz: 98 %  
Ausbeuten der Wertprodukte:  
2-Phenyl-2.2-dimethoxy-ethanol: 19 %  
2-Phenyl-2.2-dimethoxy-acetaldehyd: 12 %  
2-Phenylglyoxal dimethylacetal: 5 %  
20 Phenylglyoxylsäuremethylorthoester und 2-Phenyl-2.2-dimethoxy-  
essigsäuremethylester: 9 %  
Gesamt: 45 %

## Vergleichsbeispiel 2:

25

Ansatz: 450 g Acetophenon  
30 g Kaliumiodid  
2460 g Methanol  
Kathode: Graphit  
30 Anode: Graphit  
Dauer: 7,03 h  
Temperatur: 36 °C  
Ladungsmenge: 3,5 F  
Stromstärke: 5 A  
35 Umsatz: 95%  
Ausbeuten der Wertprodukte:  
2-Phenyl-2.2-dimethoxy-ethanol: 7 %  
2-Phenyl-2.2-dimethoxy-acetaldehyd: 25 %  
2-Phenylglyoxal dimethylacetal: 3 %  
40 Phenylglyoxylsäuremethylorthoester und 2-Phenyl-2.2-dimethoxy-  
essigsäuremethylester: 1 %  
Gesamt: 36%

## Vergleichsbeispiel 3:

45

Ansatz: 450 g Octanal  
90 g Kaliumiodid

Kathode:  
Anode:  
5 Dauer:  
Temperatur:  
Strommenge:  
Stromstärke:  
Umsatz:  
10 Ausbeute:

2460 g Methanol  
Graphit  
Graphit  
3,76 h  
55-58°C  
2 F  
5 A  
>99 %  
30 %

## Vergleichsbeispiel 4:

15 Ansatz:  
Kathode:  
Anode:  
Dauer:  
20 Temperatur:  
Strommenge:  
Stromstärke:  
Umsatz:  
Ausbeute:

450 g Octanal  
90 g Kaliumiodid  
2460 g Methanol  
Graphit  
Graphit  
3,76 h  
26-28°C  
2 F  
5 A  
>99 %  
40 %

25

## Vergleichbeispiel 5:

30 Ansatz:  
Kathode:  
Anode:  
Dauer:  
35 Temperatur:  
Stromstärke:  
Umsatz:  
Selektivität:  
Ausbeute:

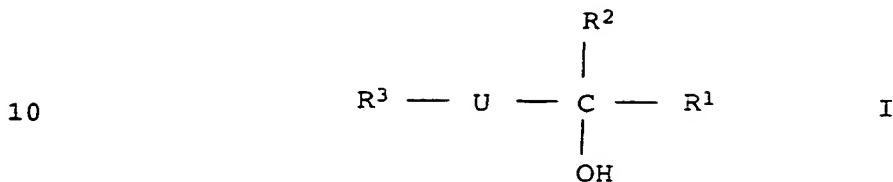
450 g Methylglyoxal-  
dimethylacetal  
45 g Kaliumiodid  
2505 g Methanol  
Graphit  
Graphit  
5 h  
30 °C  
5 A  
>99%  
24,6%  
2,2,3,3-Tetramethoxypropanol  
24,6%

40

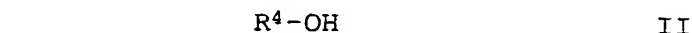
45

## Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von einer Verbindung der allgemeinen Formel I



in der  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  Wasserstoff,  $C_1$ - bis  $C_{20}$ -Alkyl,  $C_2$ - bis  $C_{20}$ -Alkenyl,  $C_2$ - bis  $C_{20}$ -Alkynyl,  $C_3$ - bis  $C_{12}$ -Cycloalkyl,  $C_4$ - bis  $C_{20}$ -Cycloalkyl-alkyl,  $C_1$ - bis  $C_{20}$ -Hydroxyalkyl, gegebenenfalls durch  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  $C_8$ -Alkoxycarbonyl oder Cyano substituiertes Aryl oder  $C_7$ - bis  $C_{20}$ -Arylalkyl, oder  $R^1$  und  $R^2$  oder  $R^3$  gemeinsam eine gegebenenfalls durch  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy und/oder Halogen ein- bis zweifach substituierte  $C_2$ - bis  $C_9$ -Alkandiyleinheit, in der 1 oder 2 Methylgruppen auch durch eine Einheit ( $CH=CH$ ) ersetzt sein können, bedeutet und  $R^3$  zusätzlich eine acetalisierte Carbonylgruppe, in der sich die Alkoxygruppen von einem Alkohol der allgemeinen Formel II



ableiten, in der  $R^4$  für  $C_1$ - bis  $C_6$ -Alkyl steht, bedeutet und

U eine acetalisierte Carbonylgruppe, in der sich die Alkoxygruppen von einem Alkohol der allgemeinen Formel II ableiten oder

einer Verbindung der allgemeinen Formel III



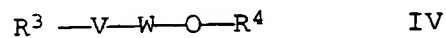
in der  $R^1$  die gleiche Bedeutung wie in Formel I hat und  $R^3$  ausschließlich gegebenenfalls  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  $C_8$ -Alkoxycarbonyl oder Cyano substituiertes Aryl ist

V eine Carbonylgruppe bedeutet oder die gleiche Bedeutung wie U in Formel I hat und

W die gleiche Bedeutung wie V hat, mit der Maßgabe, daß eine der Gruppen V oder W eine Carbonylgruppe und die andere Gruppe eine acetalisierte Carbonylgruppe bedeutet

oder

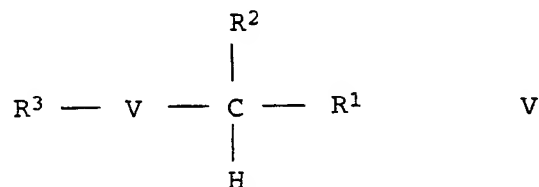
einer Verbindung der allgemeinen Formel IV



in der  $R^4$  die gleiche Bedeutung wie in Formel II hat, V und W die gleiche Bedeutung wie in Formel II haben und  $R^3$  die gleiche Bedeutung wie in Formel III hat,

indem man eine Verbindung der allgemeinen Formel V

20



25

in der V,  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  die gleiche Bedeutung wie in Formel I bzw. III haben, mit der Maßgabe, daß

- für den Fall, daß eine Verbindung der Formel III gewünscht wird, nur eine solche Verbindung Va eingesetzt wird, in der

$R^1$  ausschließlich Wasserstoff bedeutet und

35

$R^3$  ausschließlich gegebenenfalls durch  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  $C_8$ -Alkoxy-carbonyl oder Cyano substituiertes Aryl und

40

- für den Fall, daß eine Verbindung der Formel IV gewünscht wird, nur eine solche Verbindung Vb eingesetzt wird, in der

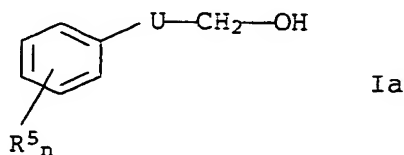
45

$R^1$  und  $R^2$  ausschließlich Wasserstoff bedeuten,

$R^3$  ausschließlich gegebenenfalls durch  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  $C_8$ -Alkoxy-carbonyl oder Cyano substituiertes Aryl

mit einem Alkohol der allgemeinen Formel II in Gegenwart eines Hilfselektrolyten und katalytischen Mengen eines Metallsalzes (S), abgeleitet von einem Metall der 1., 2., 6. oder 8. Nebengruppe oder von Blei, Zinn oder Rhenium, elektrochemisch umgesetzt.

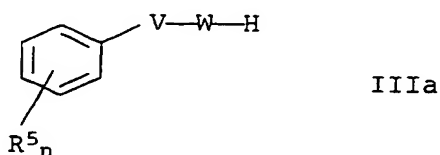
2. Verfahren nach Anspruch 1, zur Herstellung einer Verbindung der allgemeinen Formel Ia



in der U die gleiche Bedeutung wie in Formel I hat,

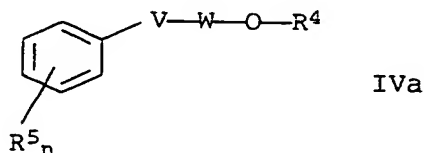
n 0, 1, 2 oder 3 bedeutet und

$R^5$   $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl,  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkoxy, Halogen,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkyl,  $C_1$ - bis  $C_4$ -Halogenalkoxy, Phenyl, Phenoxy, Halogenphenyl, Halogenphenoxy, Carboxy,  $C_2$ - bis  $C_8$ -Alkoxy-carbonyl oder Cyano bedeutet



oder der allgemeinen Formel IIIa

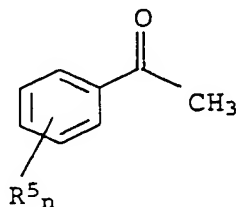
in der n, V, W und  $R^5$  die gleiche Bedeutung wie in Formel Ia bzw. III haben



oder der allgemeinen Formel IVa

in der n, V, W, R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> die gleiche Bedeutung wie in Formel Ia bzw. IIIa haben, indem man als Ausgangsverbindung der allgemeinen Formel V eine solche der allgemeinen Formel Va

10



Va

15

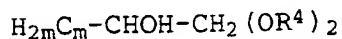
einsetzt, in der n und R<sup>5</sup> die gleiche Bedeutung wie in Formel Ia haben.

20

3. Verfahren nach Anspruch 2, wobei es sich bei der Verbindung der allgemeinen Formel Ia um 2-Phenyl-2.2-dimethoxyethanol, der allgemeinen Formel IIIa um 2-Phenyl-2.2-dimethoxyacetaldehyd und 2-Phenylglyoxal dimethylacetal, der der allgemeinen Formel IVa um Phenylglyoxylsäuremethylorthoester und der der allgemeinen Formel Va um Acetophenon handelt.

25 4.

Verfahren nach dem Anspruch 1, wobei es sich bei der Verbindung der allgemeinen Formel I um eine der allgemeinen Formel Ib

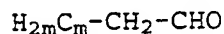


Ib

30

in der m eine Zahl von 1 bis 10 bedeutet und R<sup>4</sup> die gleiche Bedeutung wie bei Formel II hat und es sich bei der Verbindung der allgemeinen Formel V um eine der allgemeinen Formel Ib

35



Vb

handelt.

40 5.

Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, wobei es sich bei der Verbindung der Formel I um 2,2,3,3-Tetramethoxypropanol handelt und als Ausgangsverbindung Methylglyoxal dimethylacetal eingesetzt wird.

45 6.

Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 5, wobei sich die Anionen des Metallsalzes (S) von Mineralsäuren ableiten.



7. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 6, wobei es sich bei den Anionen des Metallsalzes (S) um Phosphat, Sulfat, Nitrat, Perchlorat oder Halogenid handelt.
- 5 8. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 7, wobei es sich bei den Kationen des Metallsalzes (S) um Eisen, Nickel, Platin, Palladium, Cobalt, Zink, Silber oder Kupfer handelt.
- 10 9. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 8, bei dem in der Elektrolyseflüssigkeit 1 bis 1000 Gew.-ppm Metallionen des Metallsalzes (S), bezogen auf die Gesamtmenge der Elektrolyseflüssigkeit, vorliegen.
- 15 10. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 9, wobei die Elektrolyseflüssigkeit einen halogenhaltigen Hilfselektrolyten enthält.
11. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 10, wobei die Elektrolyseflüssigkeit im wesentlichen besteht aus
- 20 - einer Ausgangsverbindung der allgemeinen Formel V
- einem Alkohol der allgemeinen Formel II
- einem halogenhaltigen Hilfselektrolyten
- 25 - katalytischen Mengen des Metallsalzes (S)
- gegebenenfalls den gewünschten Produkten der allgemeinen Formeln I, III und IV
- 30 - gegebenenfalls sonstigen Nebenprodukten der Elektrolyse die von den Verbindungen der allgemeinen Formeln I, II, III, IV und V abgeleitet sind und
- 35 - gegebenenfalls sonstigen üblichen Cosolventien.
12. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 11, wobei
- 40 - der Anteil der Ausgangsverbindungen und Produkte der allgemeinen Formeln I, III, IV und V sowie der sonstigen Nebenprodukte der Elektrolyse aus den vorgenannten Verbindungen 1 bis 70 Gew.-%,
- der Anteil des Alkohols der allgemeinen Formel II 14,9
- 45 bis 94,9 Gew.-%,

18

- der Anteil an Hilfselektrolyt 0,1 bis 5 Gew.-% und
- der Anteil an gegebenenfalls vorhandenem Cosolvens 0 bis 70 Gew.-%

5

bezogen auf die Elektrolyseflüssigkeit, beträgt.

13. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 12, wobei man die Elektrolyse in einer ungeteilten Elektrolysezelle durchführt.

10

14. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 13, wobei man als Anoden solche aus Edelmetallen, Edelmetalloxiden, Graphit oder Kohlematerialien und als Kathoden solche aus Eisen, Stahl, Nickel, Zink, Edelmetallen, Graphit oder Kohlematerialien einsetzt.

15

20

25

30

35

40

45

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/07026

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C25B3/02 C07C43/315 C07C47/277

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C25B C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 460 451 A (BASF) 11 December 1991 (1991-12-11) cited in the application claims; examples ---	1
A	T. SHONO: "Electro-organic chemistry. Part 93. Electro-organic transformation of aldehydes and ketones to alpha-hydroxylated acetals using mediators and some synthetic uses of the products" JOURNAL OF THE CHEMICAL SOCIETY, PERKIN TRANSACTIONS 1, 1986, pages 73-77, XP002138877 LETCWORTH GB the whole document -----	1

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 December 2000

Date of mailing of the international search report

02/01/2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Wright, M

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/07026

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 460451	A	11-12-1991	DE 4017575 A	05-12-1991
			DE 4017576 A	05-12-1991
			DE 59105416 D	14-06-1995
			US 5266171 A	30-11-1993
<hr/>				

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Patentkennzeichen

PCT/EP 00/07026

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C25B3/02 C07C43/315 C07C47/277

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C25B C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 460 451 A (BASF) 11. Dezember 1991 (1991-12-11) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Beispiele -----	1
A	T. SHONO: "Electro-organic chemistry. Part 93. Electro-organic transformation of aldehydes and ketones to alpha-hydroxylated acetals using mediators and some synthetic uses of the products" JOURNAL OF THE CHEMICAL SOCIETY, PERKIN TRANSACTIONS 1, 1986, Seiten 73-77, XP002138877 LETCWORTH GB das ganze Dokument -----	1

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

21. Dezember 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

02/01/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Wright, M

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationale Patentzeichen

PCT/EP 00/07026

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 460451	A	11-12-1991	DE	4017575 A	05-12-1991
			DE	4017576 A	05-12-1991
			DE	59105416 D	14-06-1995
			US	5266171 A	30-11-1993
<hr/>					